

氏名・(本籍)	みず 谷 直 樹
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理博第 1147 号
学位授与年月日	平成 2 年 3 月 28 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程) 物理学第二専攻
学位論文題目	enhanced 核スピン系と液体ヘリウム間の Kapitza 抵抗
論文審査委員	(主査) 教 授 小松原 武 美 教 授 都 築 俊 夫 助 教 授 澤 田 安 樹

論 文 目 次

- 第 1 章 序。(1) Kapitza 抵抗, (2) 異常-Kapitza 抵抗, (3) hyperfine enhanced 核スピン系, (4)本研究の目的。
- 第 2 章 実験方法。(1) 試料の作成, (2) Kapitza 抵抗の測定方法, (3) 帯磁率測定, (4) 温度測定, (5)~(7) 冷却方法, (8) HoVO_4 の比熱測定方法, (9) ^3He の精製。
- 第 3 章 実験結果及び考察。(1) TmVO_4 の単結晶, (2) TmVO_4 の粉末, (3) HoVO_4 , (4) 理論との比較。
- 第 4 章 結論。

論文内容要旨

第1章

(1) Kapitza 抵抗とは異なる物質が接している際の、境界面での熱抵抗のことで、温度差と熱流の比として定義されさる。それは一般に温度 T の -3 乗に比例し、低温になるに従い増大するために、物質を超低温へ冷却する際の障害となる。測定結果の多くは、この温度依存性を示し、抵抗値の大きさもフォノンが境界面での熱伝達を担うとする Khalatnikov の音響不整合理論 (AM 理論) で説明される。

(2) しかし、中には、その理論では説明できない振舞いが観測されており、これを異常 Kapitza 抵抗と呼んでいる。その機構は十分に解明されておらず、技術的側面からも、理論的側面からも興味を持たれている。特に、CMN と液体 ^3He の間の Kapitza 抵抗は、約 20mK 以下で、温度と共に減少する非常に興味深い振舞いが観測されている。 ^4He をドープすると抵抗が増大すること、磁場依存性があることから、Ce イオンの $4f$ 電子スピンと ^3He 核スピンの磁氣的結合が、その異常の起源と考えられている。しかし、そのような特異な Kapitza 抵抗は、CMN でしか観測されていない。また、CMN では、結晶水の脱水が起きやすく表面が不安定なこと、スピン-格子間の熱抵抗が大きいことから、再現性のよい実験はほとんどなされておらず、温度、磁場依存性も確定していない。

(3) そこで、温度と共に減少する Kapitza 抵抗は、CMN に特有かという疑問が生じ、これを調べることにした。試料として、どういう磁性体を用いるかを考えると、電子が磁性を担っていて $\sim\text{mk}$ まで常磁性であるものは、ほとんどが結晶水を含むため、よくない。核スピンは、その磁気モーメントが非常に小さいため磁氣的結合が起こりにくく、これも、よくないと考えた。そこで、超微細相互作用により核スピンの磁気モーメントが増大されている hyperfine enhanced 核スピン系に着目し、その中でも、結晶表面が安定で、なおかつ、スピン-格子間の熱抵抗が小さい。TmVO₄ と HoVO₄ を取り上げた。Ho の enhanced 核スピンの磁気モーメントは、Tm のそれより約 3.8 倍大きい。この違いが Kapitza 抵抗に及ぼす影響を調べるために、これら 2 つを取り上げた。Tm 核スピンは 774 倍に増大されており、 $80\mu\text{K}$ でも磁氣的にオーダーしない。Ho 核スピンは 170 倍に増大されており、 $I=7/2$ で電気四重極相互作用が存在し、また、もともとのモーメントが大きいので、約 5mK で反強磁性状態に転移する。

(4) 温度と共に減少する特異な Kapitza 抵抗が CMN だけに特有か、それとも他の磁性体でも一般的に存在するかを調べ、そして、磁氣的結合による特異な Kapitza 抵抗の機構を明らかにすることを目的に、Kapitza 抵抗に対する ^4He の効果、磁氣的 Kapitza 抵抗の温度依存性、磁場依存性、そして、磁性体の磁気モーメントの大きさと磁氣的 Kapitza 抵抗との関係を調べる。

第2章

TmVO₄ と HoVO₄ の粉末の試料は、自ら作成し、できているかを X 線などでチェックした。

Kapitza 抵抗の測定には熱緩和法を用いた。試料のスピンを断熱消磁冷却の原理で冷却し、その後の、液体 He の温度への緩和時間を測定する。試料の熱容量を用いた関係式から Kapitza 抵抗を求める。

試料のスピンの温度は、その測定した帯磁率から決定した。液体 He の温度は、CMN 温度計で測定した。試料の帯磁率は、SQUID を用いて、CMN の帯磁率は、low level 発振器を用いて測定した。試料のスピンの温度計としての較正には、⁶⁰Co の NO 温度計、CMN 温度計を用いた。

冷却方法は、10mK 以上では、希釈冷凍機を用いた。実験セルの中に液体 He を入れ、その中に試料がつかっている。希釈冷凍機の混合室に熱接触をとった銅線束が液体につかっており、これにより液体の温度をコントロールする。10mK 以下へは、細かく砕いた CMN の断熱消磁冷却を行い、それに接している液体 He を冷却する。2 mK 以下へは、銅の核断熱消磁冷却を行った。核ステージに取り付けたセルの内壁には、銀の粉末が焼結してあり、これが熱交換器として、液体 He を冷却する。

³He には不純物として ⁴He が含まれており、これを取り除くために、³He の精製装置を製作し、これにより、⁴He を当初の3000ppm から10ppm 以下とした。

第3章

(1) 実験は、まず、AM 理論が言う T^{-3} の依存性が本当に出るかを意図して、10~40mK で、 $4 \times 4 \times 20$ mm の TmVO₄ の単結晶と含まれる ⁴He が3000ppm の³He、及び、³He が 5 % の mixture で行った。結果は、いずれの場合も T^{-3} に比例し、抵抗値り大きさも AM 理論で説明できた。

(2) 次に、磁氣的結合を探るため、高純度 ³He で行った。試料がバルクだと表面積の割合が小さく、Kapitza 抵抗が大きいため、低温での測定が困難なので、TmVO₄ の試料は直径37 μ m 以下の粉末を用いた。⁴He の効果を調べるために、高純度 ³He の他に、含まれる ⁴He が200ppm、3000ppm の ³He でも測定した。高純度 ³He では、Kapitza 抵抗は約 5 mK にピークを作り、それ以下では温度と共に減少した (図 1)。CMN 以外の物質で始めて温度と共に減少する Kapitza 抵抗が観測された。⁴He が200ppm の場合には、高純度 ³He の場合と同様な結果となった。これは、加えた ⁴He がセルの上部で吸着され、試料まで到達しなかったためと考えられる。⁴He を3000ppm 加えた場合には、抵抗は増大し、AM 理論でほぼ説明できる値 (R_{AM}) となった。これらの結果は、高純度 ³He の場合には、温度と共に減少する磁氣的 Kapitza 抵抗 R_{MAG} が、 T^{-3} に比例する R_{AM} に並列に存在し、そのためにピークを作ったと考えられ、⁴He を加えると、それが試料表面をおおい、³He 核スピンと Tm 核スピンの距離が遠ざけられ、磁氣的結合が弱

められ、 R_{MAG} が非常に大きくなり、その結果、 R_{AM} のみが残ったと解釈される。

次に、この R_{MAG} の温度依存性を明らかにするために、より低温までの測定を行った。低温領域では、ほぼ T^2 に比例しており、 R_{MAG} が T^2 に比例し、 R_{AM} に並列に存在するとしてフィッティングさせると、測定結果の温度依存性をよく説明できた (図 2)。磁氣的 Kapitza 抵抗の T^2 依存性は、本研究で始めて得られた。

次に、Kapitza 抵抗の磁場依存性を測定した。高温領域では磁場依存性がないのに対し、低温領域では Kapitza 抵抗は磁場と共に増大し、67Gauss では T^{-3} にほぼ比例した (図 3)。この結果は、 R_{AM} に並列に存在する R_{MAG} が磁場と共に増大し、そして、67Gauss では R_{AM} のみが残ったと解釈される。磁場依存性があることは、磁氣的結合の考え方を支持している。

(3) 次に、磁気モーメントが大きい $HoVO_4$ で測定を行った。Kapitza 抵抗を求めるには、比熱の値が必要なので、まず、これを測定した。結果は、常磁性領域では、ショットキー比熱の計算値で説明された。 Ho 核スピンの受ける局所場が大きく、その消磁冷却には大きい磁場が必要なことなどから、Kapitza 抵抗の測定は次のようにした。冷却用 CMN の温度を変化させた後の Ho 核スピンの緩和時間を測定する。このとき、 3He の熱抵抗なども含まれるので、計算機によるシミュレーションを行い、測定した緩和時間を再現するように、 $HoVO_4$ と 3He の間の Kapitza 抵抗を求めた。その結果、常磁性領域では、Kapitza 抵抗は、温度と共に減少した (図 4)。しかし、抵抗値の大きさは、 $TmVO_4$ の場合に比べ、2~3 けた小さかった。これは、 Tm と Ho の核スピン系の違いを反映した結果と考えられる。反強磁性領域では、Kapitza 抵抗は温度減少に従い増大した。この温度依存性の違いは、 Ho 核スピン系の状態の違いを反映した結果と考えられる。

(4) 数層分の 4He の吸着で、磁氣的結合が断たれることから、界面近傍の 3He が主に関与していると考えられる。液体 3He が他の固体に接しているとき、1 層目と 2 層目は吸着し固体になっていることが知られており、この固体 3He の核スピンの Tm, Ho の enhanced 核スピンの磁氣的結合を考える。磁氣的 Kapitza 抵抗を扱った理論の論文がいくつか出されており、それらを参考にした。本研究では、 3He の層を 1 層目と 2 層面に分けて考えた。これまでの論文では、このようなことは、なされていない。モデルは、吸着した固体 3He の核スピンの Tm, Ho の enhanced 核スピンの双極子相互作用により相互反転し、それに伴ってエネルギーが流れるとするものである。

計算を行った結果、磁氣的 Kapitza 抵抗はエネルギー準位の占有確立から T^2 に比例すること、 3He 核スピンの磁気モーメントが Tm, Ho の enhanced 核スピンのそれより 2 けた以上小さいために、磁場中でそれらがカップルしなくなり、抵抗は磁場と共に増大すること、そして、 Ho の enhanced 核スピンの磁気モーメントが Tm のそれより大きいので、 3He 核スピンの相互作用が大きく、従って、 $HoVO_4$ では、 $TmVO_4$ より抵抗が小さくなることを得、実験結果を定性的に説明できた。

第4章

TmVO₄, HoVO₄ と液体 ³He の間で温度と共に減少する Kapitza 抵抗が観測され, そのような得意な Kapitza 抵抗が CMN だけに特有でないことがわかった。実験結果として, 磁氣的 Kapitza 抵抗は, ⁴He をドーブすると増大すること, T² に比例すること, 磁場と共に増大すること, そして HoVO₄ では TmVO₄ より 2~3 けた小さいことを得た。“Tm, Ho の enhanced 核スピンの試料表面に吸着した固体 ³He の核スピンの磁氣的に結合する” というモデルで計算を行った結果, 実験結果を定性的に説明できた。以上のことから, 温度と共に減少する得意な Kapitza 抵抗の期限は, Tm, Ho の enhanced 核スピンの試料表面に吸着した固体 ³He の核スピンの磁氣的結合であると結論された。

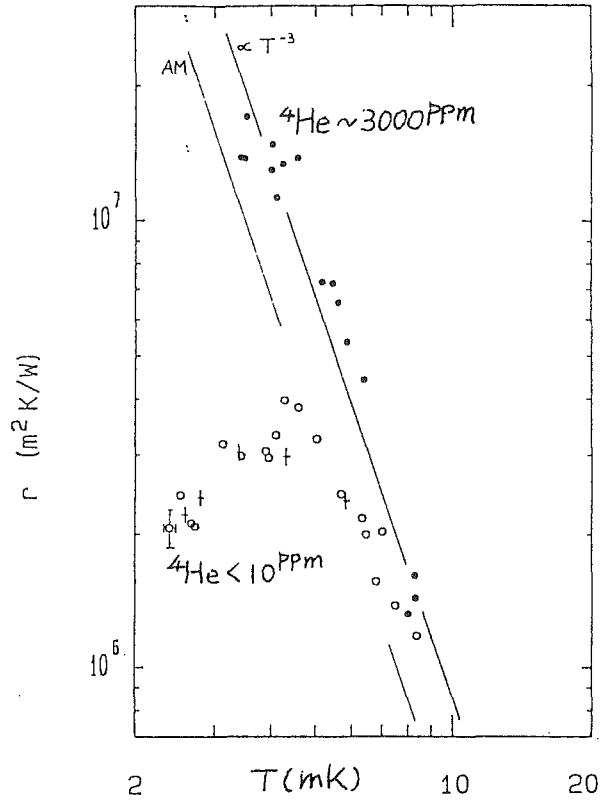


图 1.

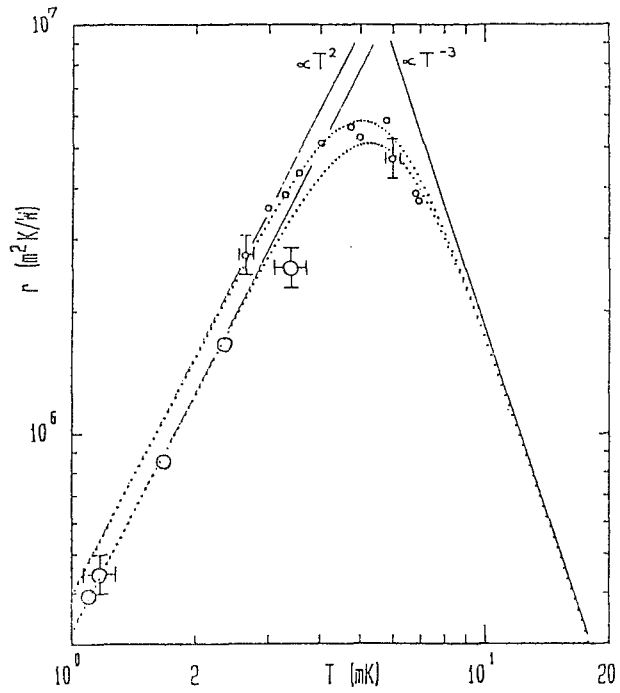


图 2.

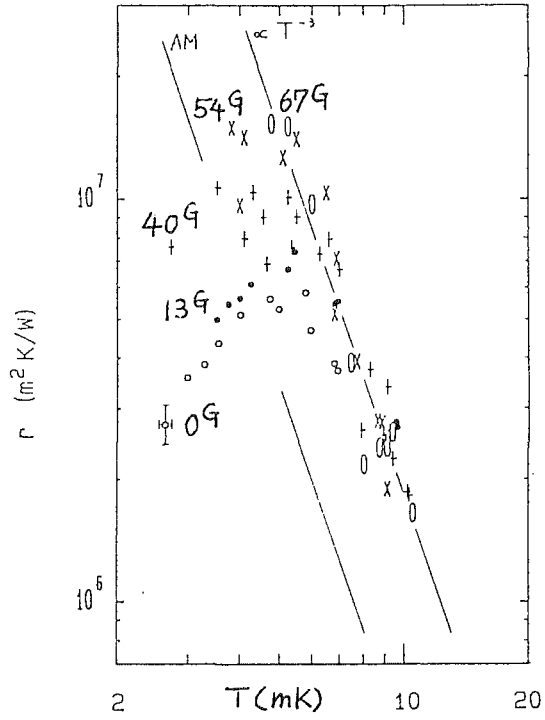


图 3.

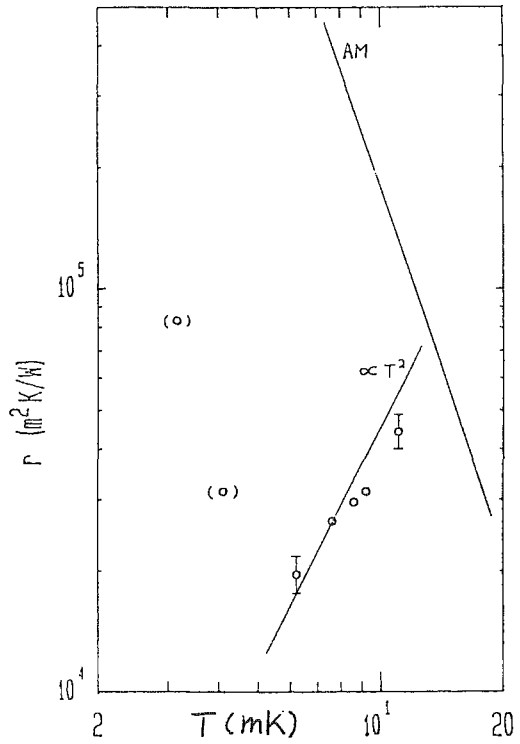


图 4.

論文審査の結果の要旨

異なる物質間の境界面の熱抵抗は、Kapitza 抵抗と呼ばれ、固体と液体ヘリウムの間では、10 mK~100mK の間で一般に T^{-3} であり、音響不整合 (AM) 論で理解されているが、低温生成の大きな障害になるため、実用的にも興味もたれている。しかし、CMN では、20mK 以下では降温とともに低下する異常な振舞いが観測され、Ce の電子スピンの ^3He 核スピンの磁気的結合に起因した熱抵抗と考えられ、磁気的 Kapitza 抵抗と呼ばれて実験、理論とも盛んに研究されている。

本論文は、磁気的 Kapitza 抵抗の発生機構を解明するため、結晶表面が安定な無水和物で、電子の磁気モーメントと核スピンの結合した hyperfine enhanced 核スピン系の TmVO_4 と HoVO_4 について研究を行ったものである。

TmVO_4 の単結晶では、10mK から40mK まで AM 理論で説明できる T^{-3} 依存性を確認し、粉末試料について、希釈冷凍機、断熱消磁冷却、核断熱消磁冷却法で1mK までの Kapitza 抵抗を測定した結果、 T^2 となる新しい現象を発見した。しかし、 ^4He を3000ppm 加えた ^3He との間では、AM 理論で説明できる値に増大する結果となった。これは、 ^3He 核スピンと Tm 核スピンの磁気的結合が固体表面に優先的に吸着した ^4He によって妨げられるためと解釈された。更に、磁気的 Kapitza 抵抗は磁場と共に増大することも発見した。これ等は、CMN 以外で初めて発見された磁気的 Kapitza 抵抗の振舞いである。

更に、enhanced 核スピンの磁気モーメントの大きさが Tm 系の3.8倍大きな HoVO_4 についても磁気的 Kapitza 抵抗を研究し、Tm 系に比して約2桁小さいが、6~11mK では T^2 、5mK 以下の反強磁性状態では、降温とともに増大する新しい結果を得た。

これらの実験結果に対し、 ^3He 核スピンと固体の核スピンの磁気的結合に起因した磁気的 Kapitza 抵抗であるとし、 ^3He が固体表面に2層まで固体状態で吸着するという最近の研究成果に着目し、固体の核スピンと固体表面の2層の固体状 ^3He の核スピンの双極子相互作用により、相互反転し、エネルギーが流れるというモデルを適用し、定性的に説明することができた。

これらは著者が超低温の実験的研究者としての素養を身に付け、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。

よって、水谷直樹提出の論文は理学博士の学位論文として合格と認める。